

## ⑫特許公報(B2) 昭58-26376

⑬Int.Cl.<sup>3</sup>C 08 L 83/04  
C 08 K 5/54

識別記号

CAF

府内整理番号

7019-4J  
7342-4J

⑭公告 昭和58年(1983)6月2日

発明の数 1

(全8頁)

1

2

## ⑮ゴム状に硬化しうるオルガノポリシロキサン組成物

⑯特 願 昭52-115367

⑰出 願 昭52(1977)9月26日

⑯公 開 昭54-48853

⑯昭54(1979)4月17日

⑰發明者 松本 安司

太田市大字牛沢 887-35

⑰發明者 村井 文治郎

太田市飯塚町1317-2

⑰發明者 河村 玲恵子

太田市大字牛沢 887-35

⑰出願人 東芝シリコーン株式会社

東京都港区六本木6丁目2番31号 15

⑰代理人 弁理士 古谷 駿

## ⑯特許請求の範囲

1 (A) 一般式  $R_a^1 R_b^2 SiO_{4-(a+b)}$ 

2

20

(式中、 $R^1$ はアルケニル基、 $R^2$ は脂肪族不飽和結合を含まぬ置換または非置換の1価炭化水素基、 $a$ は1および2から選ばれた数、 $b$ は0、1および2から選ばれた数で、 $a+b$ が1、2および3から選ばれた数を示す)で表わされる単位を分子中に少くとも2個有するオルガノポリシロキサン、100重量部

25 (B) 一般式  $R_c^3 H_d SiO_{4-(c+d)}$ 

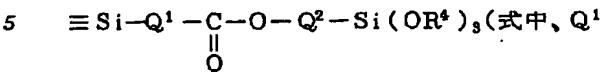
2

30

(式中、 $R^3$ は置換または非置換の1価炭化水素基、 $c$ は0、1、および2から選ばれた数、 $d$ は1および2から選ばれた数で、 $c+d$ が1、2および3から選ばれた数を示す)で表わされる単位を有し、かつケイ素原子に結合した水素原子を分子中に少くとも3個有するオルガノハイドロジエンポリシロキサンを(A)のオルガノポリシロキサン中の $R^1$ 1個に対してケイ素原子

に結合した水素原子の量が0.5~4.0個になるような量

(C) ケイ素原子に結合した水素原子を分子中に少なくとも1個と、一般式



および $Q^2$ は直鎖状または分岐状のアルキレン基、 $R^4$ は炭素数1~4のアルキル基を示す)で表わされる基を分子中に少くとも1個有する有機ケイ素化合物、1~10重量部、および

(D) 白金および白金化合物から選ばれた触媒を白金として、(A)のオルガノポリシロキサンに対しても1~100ppmから成る、ゴム状に硬化しうるオルガノポリシロキサン組成物。

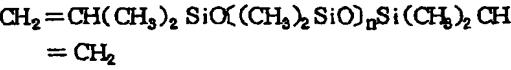
2 (A)の $R^1$ がビニル基である、特許請求の範囲第1項記載の組成物。

3 (A)のオルガノポリシロキサンが一般式



(式中、 $R^2$ は前述のとおり、 $n$ は20~5,000の数を示す)で表わされる、特許請求の範囲第1項記載の組成物。

4 (A)のオルガノポリシロキサンが、一般式



(式中、 $n$ は前述のとおり)で表わされる、特許請求の範囲第1項記載の組成物。

5 (B)のオルガノハイドロジエンポリシロキサンが、一般式



(式中、 $R^5$ は水素原子またはメチル基、 $p$ は1~100たゞし $R^5$ がメチル基のとき $p$ は3~100、 $q$ は0~100の数を示す)で表わされる、特許請求の範囲第1項記載の組成物。

35 6 (B)のオルガノハイドロジエンポリシロキサンが、 $(CH_3)_2 HSiO_{1/2}$ 単位と $SiO_2$ 単位から成り、ケイ素原子に結合した水素原子の含有量が0.3~

1.2重量%である、特許請求の範囲第1項記載の組成物。

7 さらに無機質充填剤を添加した、特許請求の範囲第1項記載の組成物。

#### 発明の詳細な説明

本発明は、比較的低温で硬化し、プライマーを使用することなく金属およびプラスチックなどの基材に対して強固に接着する、自己接着性シリコーンゴム組成物に関する。

ヒドロシリル基とケイ素原子に結合したビニル基との反応によって硬化するシリコーンゴムはすでによく知られている。この種のシリコーンゴムは、耐熱性、電気絶縁性などにすぐれしており、またシリカなどの充填剤を配合したものは自己消火性を有するために、電気・電子部品のポツティング、コイルの含浸などに用いられている。

しかしながら、このようなシリコーンゴムは接着性を有しないために、電気・電子部品のポツティングなどに用いた場合、部品とシリコーンゴムの間に生じた間隙から湿気が侵入し、これが原因で部品の腐食や絶縁不良を起こすという欠点があつた。

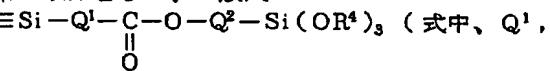
そこで、シリコーンゴムを、このような電気・電子部品に接着させるために、各種のプライマーが開発されている。しかし、これらのプライマーを用いることは、プライマーの処理や乾燥に要する工程が追加されるために、煩雑である。また、多くのプライマーはトルエン、酢酸エチル、および/またはアルコール類のような溶剤を使用するために、プラスチック製部品の表面を痛めたり、塗料を溶かす怖れがあり、またその引火性や毒性に対する配慮が必要になる。

一方、シリコーンゴムの硬化に際し、その原料組成物に適当な添加成分を加えることによって、シリコーンゴムに自己接着性を付与する試みがなされてきた。特に、ビニル基含有ポリオルガノシロキサンとヒドロシリル基含有ポリオルガノシロキサンの間の付加反応によって架橋をもたらし、硬化を行う、いわゆる付加反応型シリコーンゴムに対して、第三成分として、ケイ素に結合した水素原子とトリアルコキシシリルアルキル基を有するポリシロキサンを添加するもの(特開昭48-16952号公報)、アクリロキシアルキル基を有するシランまたはシロキサンと有機過酸化物を

5 添加するもの(特開昭50-26855号公報)、ケイ素原子にエポキシ基および/またはエステル基およびケイ素原子に直結した水素原子を有するポリシロキサンを添加するもの(特開昭50-39345号公報)があるが、いずれも、電気・電子部品に用いる各種の基材に対して充分な自己接着性を示すには至っていない。

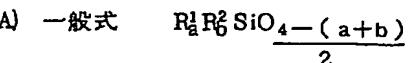
これらの不都合を改善すべく研究を重ねた結果、本発明者らはさきに、ヒドロシリル基とケイ素原子に結合したアルケニル基との反応によって硬化するシリコーンゴム組成物に、第三成分としてオキシラン基を有する不飽和炭化水素化合物を添加することにより、比較的低温、短時間の加熱によって、金属、プラスチックへの自己接着性が付与されることを見出されたが、この方法においては、オキシラン化合物のオルガノポリシロキサンとの相溶性が悪くて透明な組成物が得られないことや、自己消火性がかえつて低下することなどの欠点があつた。そこでさらに研究を進め、第三成分としてオキシラン基、トリアルコキシシリル基、およびヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサンを添加することによってこれらの欠点を改良し、さきに提案をなした(特願昭51-107459号明細書参照)。この方法では、100°Cに加熱したときの自己接着性はきわめて優れているものの、70°Cでの低温加熱では満足すべき自己接着性が得られず、そのために基材や部品の材料が100°Cに耐える必要があるという制約があつた。そこで、本発明者らはさらに研究を重ねた結果、

30 第三成分として、一般式



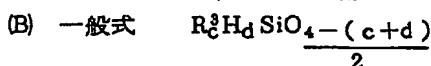
35  $\text{Q}^2$ は直鎖状又は分岐状のアルキレン基、 $\text{R}^4$ は炭素数1~4のアルキル基を示す。)で表わされる基およびヒドロシリル基を有する有機ケイ素化合物を添加することにより、70°Cでの低温加熱でも十分な自己接着性を有するオルガノポリシロキサン組成物を得ることを見出して、本発明をなすに至つた。

すなわち本発明は、



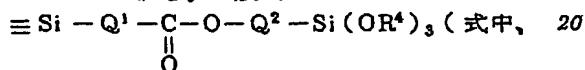
(式中、 $\text{R}^1$ はアルケニル基、 $\text{R}^2$ は脂肪族不飽和結合を含まぬ置換または非置換の1価炭化

水素基、 $a$ は1および2から選ばれた数、 $b$ は0, 1および2から選ばれた数で、 $a+b$ が1, 2および3から選ばれた数を示す)で表わされる単位を分子中に少くとも2個有するオルガノポリシロキサン、100重量部



(式中、 $R^a$ は置換または非置換の1価炭化水素基、 $c$ は0, 1、および2から選ばれた数、 $d$ は1および2から選ばれた数で、 $c+d$ が1, 2および3から選ばれた数を示す)で表わされる単位を有し、かつケイ素原子に結合した水素原子を分子中に少くとも3個有するオルガノハイドロジエンポリシロキサンを(A)のオルガノポリシロキサン中の $R^1$ 1個に対してケイ素原子に結合した水素原子の量が0.5~4.0個になるような量

(C) ケイ素原子に結合した水素原子を分子中に少なくとも1個と、一般式



$Q^1$ ,  $Q^2$ は直鎖状または分岐状のアルキレン基、 $R^4$ は炭素数1~4のアルキル基を示す)で表わされる基を分子中に少くとも1個有する有機ケイ素化合物、1~10重量部、および

(D) 白金および白金化合物から選ばれた触媒を白金として、(A)のオルガノポリシロキサンに対して1~100ppm

から成る、ゴム状に硬化しうるオルガノポリシロキサン組成物に関する。

本発明に用いられる(A)のオルガノポリシロキサンは、ケイ素原子に直結せるアルケニル基を1分子中に少くとも2個有するもので、直鎖状でも分岐状でもよく、またこれらの混合物でもよい。前記一般式における $R^1$ としては、ビニル基、アリル基、1-ブチニル基、1-ヘキセニル基などが例示されるが、合成のしやすさからビニル基が最も有利である。 $R^2$ および他のシロキサン単位のケイ素原子に結合した有機基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、ドデシル基などのアルキル基、フェニル基のようなアリール基、ステレニル基、 $\alpha$ -メチルステレニル基のようなアラルキル基が例示され、さらに、

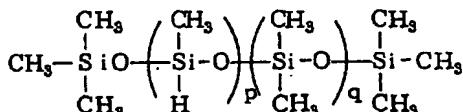
クロロメチル基、3;3,3-トリフルオロブロピル基などの置換炭化水素基も例として挙げられる。これらのうち、合成のしやすさ、硬化後の良好な物理的性質を保つのに必要なオルガノポリシロキサンの重合度をもちながら硬化前の低い粘度を保持する点から、メチル基が最も好ましい。上記の $R_a^1 R_b^2 SiO_{\frac{4-(a+b)}{2}}$  単位(式中、 $R^1$ ,  $R^2$ ,  $a$

および $b$ は前述のとおり)で表わされる単位は、オルガノシロキサンの分子鎖の末端、途中のいずれに存在しても、またその双方に存在してもよいが、硬化後の組成物にすぐれた機械的性質を与えるためには、少くとも末端に存在することが好ましい。また、組成物を注型、ポツティング、被覆、含浸などに用いるのに好ましい性質、特に硬化前の適度の流れ性と硬化後のすぐれた物理的性質を得るために、25°Cにおける粘度が50~100,000cp、特に100~10,000cpの範囲であることが好ましい。粘度がこれ未満だと、硬化後に十分な伸びや弾性が得られず、粘度がこれを越えると注型やポツティングその他の作業における作業性が著しく阻害されるからである。ただし、室温で硬化する接着剤として用いる場合は、10,000cp以上の高粘度のものを用いても、なんら問題ない。

本発明に用いられる(B)成分のオルガノハイドロジエンポリシロキサンは、架橋により組成物を網状化するために、ケイ素原子に結合した水素原子を少くとも3個有することが必要である。 $R^3$ ならびにその他のシロキシ単位のケイ素原子に結合した有機基としては、前述の(A)成分における $R^2$ と同様なものが例示されるが、合成の容易さから、メチル基が最も好ましい。かるオルガノハイドロジエンポリシロキサンは、直鎖状、分岐状、および環状のいずれであつてもよく、またこれらの混合物でもよいが、特に、次の(1)~(3)に示すような範囲の直鎖状および分岐状のものが、硬化後の組成物に良好な物理的性質を与えるうえで好ましい。

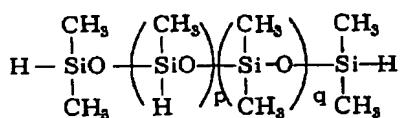
(1)  $(CH_3)_2HSiO_{\frac{1}{2}}$  単位と  $SiO_2$  単位から成り、ケイ素原子に結合した水素原子の含有量が0.3~1.2重量%の範囲である分岐状オルガノハイドロジエンポリシロキサン

(2) 一般式



(たゞし  $p$  は 3 ~ 100、 $q$  は 0 ~ 100 の数を示す) で表わされ、ケイ素原子に結合した水素原子の含有量が 0.5 ~ 1.6 重量% の範囲である直鎖状オルガノハイドロジエンポリシロキサン。

(3) 一般式



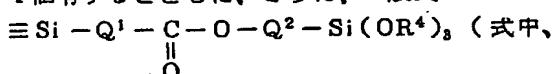
(たゞし  $p$  は 1 ~ 100、 $q$  は 0 ~ 100 の数を示す) で表わされ、ケイ素原子に結合した水素原子の含有量が 0.5 ~ 1.6 重量% の範囲である直鎖状オルガノハイドロジエンポリシロキサン。

これらのうち、合成のしやすさでは(2)が最も好ましく、硬化後の組成物に優れた機械的性質を与える点では(1)が最も好ましく、(3)がこれに次ぐ。

(B)成分の使用量は、(A)成分中のアルケニル基 1 個に対し、(B)成分中のケイ素原子に結合した水素原子が 0.5 ~ 4.0 個、好ましくは 1.0 個 ~ 3.0 個となるような量が良い。これよりも水素原子が少なすぎると組成物の硬化が十分に進行せず、硬化後の組成物の硬さが低くなるし、多すぎると硬化後の組成物の物理的性質と耐熱性が低下するからである。

本発明に用いられる(C)の有機ケイ素化合物は、本発明のオルガノポリシロキサン組成物を自己接着性にする、本発明の必須成分である。これはケイ素原子に結合した水素原子を分子中に少くとも

1 個有するとともに、さらに、一般式



$\text{Q}^1$ 、 $\text{Q}^2$  および  $\text{R}^4$  は前述のとおり) で表わされる基を分子中に少くとも 1 個有するもので、通常、シラン誘導体またはポリシロキサン誘導体であるが、合成のしやすさからは、 $\text{Si}-\text{H}$  結合と

$\equiv \text{Si}-\text{Q}^1-\text{C}=\text{O}-\text{Q}^2-\text{Si}(\text{OR}^4)_n$  が別個の

シロキサン単位に含まれるポリシロキサン骨格をもつものであることが好ましい。 $\text{Q}^1$  は合成の容易さと耐加水分解性から、炭素原子数 2 個またはそれ以上の炭素鎖から成る炭化水素基、特に一般式  $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$  (式中、 $\text{R}^6$  は水素原子またはメチル基から選ばれる 1 個の基を示す) で表わされる

ものが好ましい。また  $\text{Q}^2$  は耐加水分解性から、炭素原子数 3 個またはそれ以上の炭素鎖から成る炭化水素基、特にプロピレン基が好ましい。 $\text{R}^4$  はメチル基、エチル基、プロピル基、イソブロピル基、およびブチル基が例示される、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基を示すが、良好な接着性を与える点では、メチル基およびエチル基が好ましい。このような側鎖を含むシロキサン単位は、分子中の一部  $\text{Si}-\text{H}$  結合にアクリル酸またはメタクリル酸のトリアルコキシリルプロピルエステルを付加せしめるなどの方法で合成することができる。このような有機ケイ素化合物のシロキサン骨格は、環状でも鎖状でもよく、あるいは両者の混合物でもよいが、合成の容易さから、環状ポリシロキサン骨格をもつものが最も好ましい。環状の場合、合成の容易さから、シロキサン環を形成するケイ素原子の数は 3 ~ 6 個、好ましくは 4 個のものが用いられる。鎖状の場合分子量が大きいと粘度が高くなつて合成や取扱いに不便になるので、シロキサン鎖を形成するケイ素原子は 2 ~ 20 個、好ましくは 4 ~ 10 個のものが用いられる。

(C)成分の使用量は、(A)成分 100 重量部あたり 1 ~ 10 重量部の範囲である。1 重量部未満では十分な接着力が得られず、10 重量部を超えると、硬化して得られる弾性体の機械的性質が劣るからである。

本発明で用いられる(D)成分の白金および白金化合物から選ばれる触媒は、(A)成分のアルケニル基と(B)成分のヒドロシリル基との間の付加反応を促進するもので、白金の単体、塩化白金酸、白金 - オレフィン錯体、白金 - アルコール錯体、白金配位化合物などが例示される。(D)成分の使用量は、(A)成分に対し、白金原子の量で 1 ~ 100 ppm の範囲である。1 ppm 未満では効果がなく、100 ppm を越えて特に硬化速度の向上などが期待できない。

本発明の組成物には、必要に応じて無機質充填剤を添加することにより、その用途に適した流れ性、硬化後の硬さ、引張強さ、伸び、モジュラスなどを与えることができる。無機質充填剤としては、煙霧質シリカ、シリカエアロゲル、沈殿シリカ、粉碎シリカ、けいそう土、酸化鉄、酸化亜鉛、酸化チタン、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、炭酸亜鉛、カーボンプラックなどが例示される。これら充填剤の使用量は、本発明の目的を損なわないかぎり任意とされる。

本発明の組成物は、70°Cという低い温度の加熱でも、金属やプラスチックに対して優れた接着力を有する。これは、(C)成分の、エステル結合およびその両側の炭素原子鎖を介してケイ素原子に結合したトリアルコキシリル基のかわりに、①かかるエステル結合を有せず、単に炭素原子鎖を介してケイ素原子に結合したトリアルコキシリル基を有するもの、②炭素原子鎖ないし酸素原子を含む炭素原子鎖を介してケイ素原子に結合したエポキシ基を有するものと比較すると明瞭である。①の場合は接着力が十分でなく、②の場合は、100°C以上の加熱で優秀な接着力を発揮するにもかかわらず、70~80°Cの加熱では接着力が得られないのに対し、本発明の組成物は70~80°Cの加熱でも良好な接着力を示す。

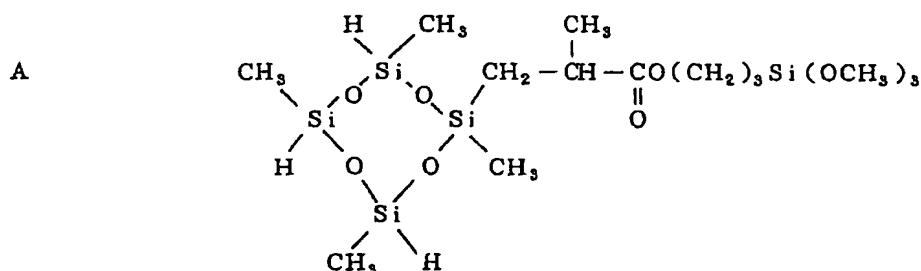
本発明の組成物は、電気・電子部品のポツティ

ング、コイルの含浸などに用いられ、特に函体として耐熱性の低いプラスチックが用いられている場合や、他に耐熱性の低い物質が組み込まれている場合に有用である。

5 以下、本発明を実施例によつて説明する。実施例において、部はすべて重量部を表わす。

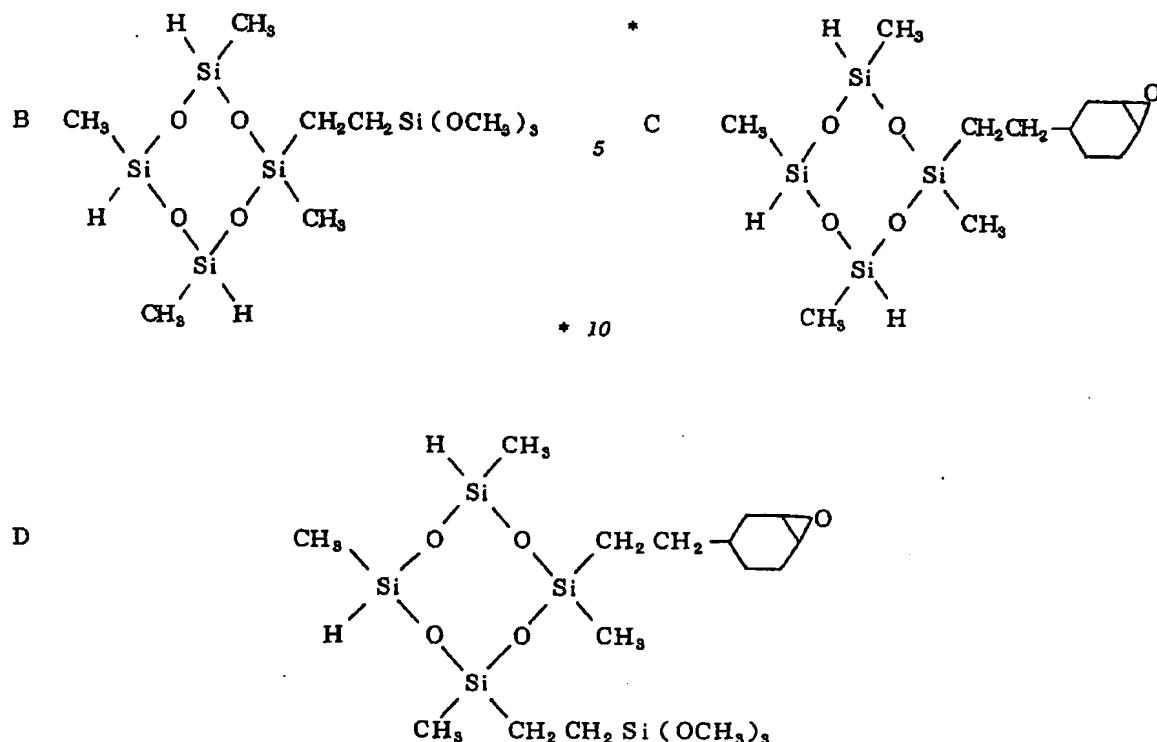
#### 実施例 1

25°Cにおける粘度3,200cStの両末端ジメチルビニルシリル基閉塞のジメチルポリシロキサン100部、25°Cにおける粘度15cStの両末端トリメチルシリル基閉塞のメチルハイドロジエンポリシロキサン2部、粒径2μの石英粉末50部、酸化チタン2部、1,3,5,7-テトラメチル-1,3,5,7-テトラビニルシクロテトラシロキサン0.2部、および塩化白金酸のイソブロピルアルコール溶液、白金として0.05部を均一に混合、分散せしめてベース組成物1を調製した。このベース組成物100部に、下記の有機ケイ素化合物A~Dを第1表に示される量添加して均一に混合して、本発明の組成物11および比較例組成物12~14を調製した。これらの組成物をアルミニウム板に塗布し、(a)150°Cで1時間、(b)100°Cで1時間、および(C)70°Cで8時間の3つの条件でそれぞれ加熱し、硬化せしめた。各種硬化条件における接着性は第1表のとおりであった。



11

12



第 1 表

		本発明例	比 較 例				
			組成物 1 1	組成物 1 2	組成物 1 3	組成物 1 4	組成物 1 5
有機ケイ素化合物 量(部)	種類	A	B	C	D	-	-
		3	3	3	3		
接 着 性	硬化条件 (a)	○	○	○	○	××	
	" (b)	○	×	×	○	××	
	" (c)	○	×	×	×	×	××

(注) ○印: 接着性良(はがれない)

×印: " 不良(容易にはがれる)

××印: " " (接着しない)

また組成物 1 1について、厚さ 2 mm のエポキシ樹脂板とアルミニウム板の間に流し込んで、70 °C 40 分で8時間の加熱で硬化せしめたものの剪断接着力は 1.4 kg/cm<sup>2</sup>、凝集破壊率は 100 % であつた。

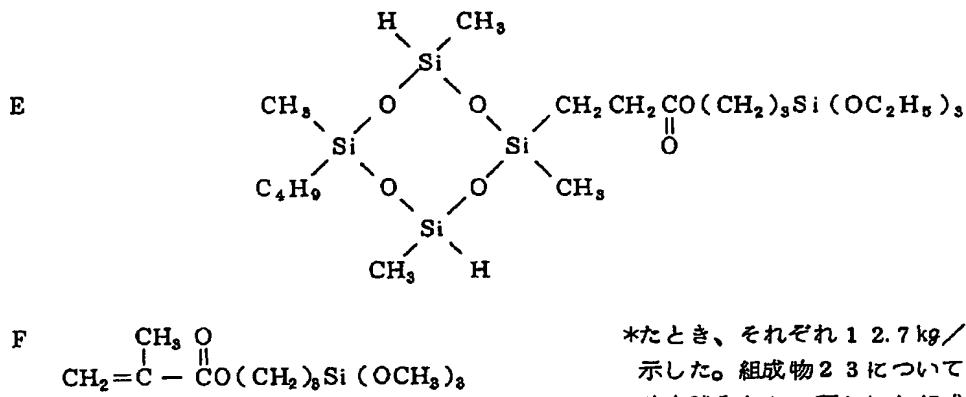
実施例 2

25 °C における粘度 550 cSt の両末端ジメチルシリル基閉塞のジメチルポリシロキサン

テルビニルシリル基閉塞のジメチルポリシロキサン 100 部、粒径 5 μ の石英粉末 150 部、酸化鉄 4 部、白金として濃度 2 % の塩化白金酸オクチル錯体 0.02 部、(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>HSiO<sub>1/2</sub> 単位と SiO<sub>2</sub> 単位から成り、ケイ素原子に結合した水素原子を 0.8 重量 % 含有するオルガノハイドロジエンポリ

シロキサン(25℃における粘度20 cSt)3部を均一に混合してベース組成物を得た。このベース組成物100部に、実施例1に用いられた有機ケイ素化合物Aおよび下記の有機ケイ素化合物E、Fを第2表に示される量添加して均一に混合し、<sup>5</sup>本発明の組成物21, 22および比較例組成物23を調製した。これらの組成物を50mm×25mm\*

\*×2mmのエノール樹脂の2枚の板の間に流し込んだのち、90℃で2時間加熱することによって硬化せしめ、剪断接着力を測定したところ、第2表で示すような結果を得た。また、これらの組成物を厚さ2mmのシート状に100℃で成形、硬化せしめた硬化物の物理的性質を、JIS K6301によって測定して、第2表に併記した。



なお、組成物22について、硬化条件を70℃、20  
6時間として剪断接着力および凝集破壊率を調べ\*

\*たとき、それぞれ12.7 kg/cm<sup>2</sup>および100%を示した。組成物23について同様の硬化条件で接着を試みたが、硬化した組成物は手で容易に基材から引き剝がれてしまった。

第2表

		本発明例		比較例
有機ケイ素化合物 量(部)	種類	組成物21	組成物22	組成物23
		A 2.5	E 3	F 4
剪断接着力、kg/cm <sup>2</sup>		17.8	15.0	5.2
凝集破壊率%		100	100	80
硬さ(JIS)		68	65	50
引張強さ、kg/cm <sup>2</sup>		36	30	14

## 実施例3

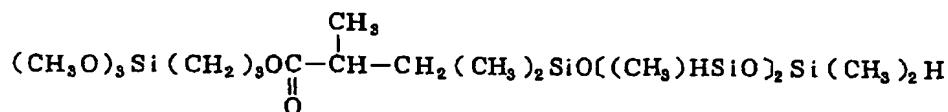
25℃における粘度5,000 cStの両末端ジメチルビニルシリル基閉塞のジメチルポリシロキサン90部、 $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_2$ 、単位43モル%、 $\text{SiO}_2$ 単位50モル%および $(\text{CH}_2=\text{CH})(\text{CH}_3)\text{SiO}$ 単位7モル%から成るオルガノポリシロキサン5部、25℃における粘度5,000 cStの両末端ジメチルビニルシリル基閉塞のジメチルポリシロキサン5部、煙霧質シリカ1.5部、酸化チタン2.5部、粒径5μの粉碎シリカ40部、白金として濃度1%の塩化白金酸の2-エチルヘキサンオール溶液0.2

部を均一に混合して、ベース組成物を得た。このベース組成物100部に、第3表に示される量の、実施例1で用いられた有機ケイ素化合物A又は下記に示す有機ケイ素化合物G、ならびに両末端トリメチルシリル基閉塞の25℃における粘度20 cStのメチルハイドロジエンポリシロキサン2部を添加して均一に混合し、組成物31および32を調製した。各種被着体に対し、80℃で4時間加熱することによって接着を行つて剪断接着力を測定した結果を、第3表に示す。なお、凝集破壊率はいずれの場合も100%であった。

15

16

G



第3表

有機ケイ素化合物	種類 量(部)	剪断接着力、kg/cm <sup>2</sup>	
		組成物3 1 A 3	組成物3 2 G 3
アルミニウム		1 6.4	1 4.8
ステンレス		1 4.2	1 3.8
エポキシ樹脂		1 2.1	1 2.5
ポリエステル樹脂		1 3.2	1 3.0
フェノール樹脂		1 4.5	1 3.8
ポリブチレンテレフタート		1 2.0	1 2.2
メラミン樹脂		1 1.8	1 2.0
ポリ塩化ビニル(硬質)		1 2.4	1 2.0

## 実施例 4

実施例2で用いられた両末端ジメチルビニルシリル基閉塞のジメチルポリシロキサンのかわりに、\* 20 \*第4表に示されたビニル基含有オルガノポリシロキサンを用いて、ベース組成物2~4を調製した。

第4表

ベース組成物	ビニル基含有オルガノポリシロキサン			
	両末端	シロキサン組成(モル%)	粘度 (25°C) cSt	量(部)
2	トリメチルシリル基	メチルビニルシロキサン 6 ジメチルシロキサン 9 4	2,500	1 0 0
3	ジメチルビニルシリル基	ジフェニルシロキサン 5 ジメチルシロキサン 9 5	3,500	1 0 0
4	ジメチルビニルシリル基	3,3,3-トリフルオロブロピルメチルシロキサン 8 ジメチルシロキサン 9 2	2,800	1 0 0

これらのベース組成物のおのおの100部に、厚さ2mmの2枚のアルミニウム板の間に流し込み、実施例1で用いられた有機ケイ素化合物Aを3部90°Cで3時間加熱したところ、いずれも良好な添加して均一に混合して得た組成物を、それぞれ40接着性を示した。